

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

1c498 U.S. PTO
09/587387
06/05/00

In re application of :
Yukihiro MATSUMOTO et al. :
Serial No. [NEW] : **Attn: Application Branch**
Filed June 5, 2000 : **Attorney Docket No. 2000-0669***
PROCESS FOR INHIBITING A :
POLYMERIZATION IN A VACUUM :
SECTION OF AN EASILY :
POLYMERIZABLE COMPOUND :
PURIFICATION SYSTEM :

CLAIM OF PRIORITY UNDER 35 USC 119

Assistant Commissioner for Patents
Washington, DC 20231

Sir:

Applicants in the above-entitled application hereby claim the date of priority under the International Convention of Japanese Patent Application No. 11-156656, filed June 3, 1999, as acknowledged in the Declaration of this application.

A certified copy of said Japanese Patent Application is submitted herewith.

Respectfully submitted,

Yukihiro MATSUMOTO et al.

THE COMMISSIONER IS AUTHORIZED
TO CHARGE ANY DEFICIENCY IN THE
FEE FOR THIS PAPER TO DEPOSIT
ACCOUNT NO. 23-0975.

By *Matthew Jacob*
Matthew Jacob
Registration No. 25,154
Attorney for Applicants

MJ/pjm
Washington, D.C. 20006
Telephone (202) 721-8200
June 5, 2000

日 本 国 特 許 庁

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

1999年 6月 3日

出 願 番 号

Application Number:

平成11年特許願第156656号

出 願 人

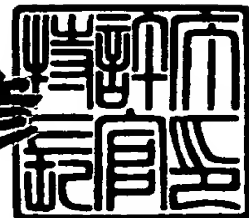
Applicant (s):

株式会社日本触媒

2000年 4月 7日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

近 藤 隆 彦



出証番号 出証特2000-3025278

【書類名】 特許願

【整理番号】 24835

【提出日】 平成11年 6月 3日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 B01D 3/00

【発明の名称】 易重合性化合物の精製方法

【請求項の数】 6

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県姫路市網干区興浜字西沖 9 9 2 番地の 1 株式会
社日本触媒内

【氏名】 松本 行弘

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県姫路市網干区興浜字西沖 9 9 2 番地の 1 株式会
社日本触媒内

【氏名】 西村 武

【特許出願人】

【識別番号】 000004628

【住所又は居所】 大阪府大阪市中央区高麗橋 4 丁目 1 番 1 号

【氏名又は名称】 株式会社日本触媒

【代理人】

【識別番号】 100067828

【弁理士】

【氏名又は名称】 小谷 悦司

【選任した代理人】

【識別番号】 100075409

【弁理士】

【氏名又は名称】 植木 久一

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 012472

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 易重合性化合物の精製方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 真空装置を用い易重合性化合物を減圧下で精製する方法であって、

上記真空装置の内部に導入される気体に対し、重合禁止剤を含んだ液体を供給することにより真空装置内での重合を防止することを特徴とする易重合性化合物の精製方法。

【請求項 2】 蒸気エジェクターと凝縮器からなる真空装置を用い、該凝縮器内に重合禁止剤を含んだ液体を供給する請求項 1 に記載の精製方法。

【請求項 3】 真空発生装置として液駆動式エジェクター及び／又は液封式真空ポンプを用い、該真空発生装置内に重合禁止剤を含んだ液体を供給する請求項 1 に記載の精製方法。

【請求項 4】 2 段以上の凝縮器を有する真空装置の第 1 段または第 1 段及び第 2 段の凝縮器内に重合禁止剤を含んだ液体を供給する請求項 2 に記載の精製方法。

【請求項 5】 前記易重合性化合物が、（メタ）アクリル酸である請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の精製方法。

【請求項 6】 前記易重合性化合物が、（メタ）アクリル酸エステルである請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の精製方法。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は（メタ）アクリル酸や（メタ）アクリル酸エステルなどの易重合性化合物を減圧下で蒸留して精製する方法に関するものである。

【0 0 0 2】

【従来技術】

（メタ）アクリル酸や（メタ）アクリル酸エステル等の易重合性化合物の蒸留工程では、蒸留中の重合を防止することを目的として、蒸留装置内を減圧してで

きるだけ温度を下げると共に、ハイドロキノンやフェノチアジンなどを重合禁止剤として添加したり、更には分子状酸素含有ガスを供給する方法等が採用されている。

【0003】

図1は、易重合性化合物の従来の精製方法を示す概略説明図であり、真空発生装置（蒸気エジェクター）と凝縮器からなる真空装置の例である。精留塔1の塔頂から留出された気体成分の内、蒸気はコンデンサー2で凝縮され、蒸気以外の非凝縮性ガスとそれに同伴された凝縮性ガスが第1段エジェクターE1に吸引される。排出された蒸気は、バロメトリックコンデンサー3で冷却液と直接接触させて凝縮し、凝縮液はエジェクターシールタンク6へ、ガスは第2段エジェクターE2に吸引される（尚、上記バロメトリックコンデンサーに代えてサーフェイスコンデンサーを用いてもよく、この場合には冷却液との直接接触はなしに蒸気は凝縮される）。第2段エジェクターE2から排出されたガスは、サーフェイスコンデンサー4で凝縮され、凝縮液はエジェクターシールタンクへ、ガスは第3段エジェクターに吸引される。第3段エジェクターE3から排出されたガスは、下流側に配設されたサーフェイスコンデンサー5で凝縮され、通常、凝縮液とガスのいずれもがエジェクターシールタンク6で液封されているが、最終段はガスが液封されていない場合もある。尚、上記精留塔1内の真空度は、圧力計7の測定結果に基づいて制御される空気調節弁8の開閉により調節される。

【0004】

また図2は、従来の他の精製方法を示す説明図であり、真空発生装置として液封式ポンプを用いる真空装置の例である。精留塔11で精留された蒸気は凝縮器12で凝縮され、非凝縮性ガスとそれに同伴された凝縮性ガスが液封式真空ポンプ13に吸引される。液封式真空ポンプ13は、タンク14の液で液封されており、液とガスはタンクへ排出される。

【0005】

但し、これらの従来の精製方法では、蒸留塔に連結されている凝縮器からでてくるガスが（メタ）アクリル酸及び／又は（メタ）アクリル酸エステルを含有していることから、蒸気エジェクターの凝縮器内部や、液駆動式エジェクターや液

封式真空ポンプを採用している場合にはこれらの内部に重合物を発生し、しばしば装置の停止を余儀なくされる状況になっていた。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は上記事情に着目してなされたものであり、（メタ）アクリル酸や（メタ）アクリル酸エステル等の易重合性化合物を蒸留するにあたり、蒸留装置内部で発生しやすい重合を防止できる方法を提供しようとするものである。

【0007】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決した本発明に係る易重合性化合物の精製方法とは、真空装置を用い易重合性化合物を減圧下で精製する方法であって、上記真空装置の内部に導入される気体に対し、重合禁止剤を含んだ液体を供給することにより真空装置内での重合を防止することを要旨とするものである。

【0008】

蒸気エジェクターと凝縮器からなる真空装置を用いる場合には、該凝縮器内に重合禁止剤を含んだ液体を供給すればよく、真空発生装置として液駆動式エジェクター及び／又は液封式真空ポンプを用いる場合には、該真空発生装置内に重合禁止剤を含んだ液体を供給すればよい。また２段以上の凝縮器を有する真空装置の場合には、第１段または第１段及び第２段の凝縮器内に重合禁止剤を含んだ液体を供給することが推奨される。

【0009】

前記易重合性化合物としては、（メタ）アクリル酸や（メタ）アクリル酸エステル等が挙げられる。

【0010】

【発明の実施の形態】

本発明者らは（メタ）アクリル酸及び／又は（メタ）アクリル酸エステルを含有するガスが減圧装置構成部材表面に付着し凝縮するまでの過程で、重合禁止剤を含んだ液体を供給すれば（常に液膜状で液構成部材表面全体に濡らして排出することにより）、減圧装置内部の重合防止できることを突き止め、本発明に想到

した。

【0011】

図3は、本発明の重合防止方法を示す概略説明図であり、精留塔1、凝縮器2、バロメトリックコンデンサー3、サーフェイスコンデンサー4、5、エジェクターシールタンク6、圧力計7、空気調節弁8、第1段エジェクターE1、第2段エジェクターE2、第3段エジェクターE3などの基本的構成は、図1に示す従来の方法と同じであるが、本発明に係る精製方法では、エジェクターシールタンク6内の液体に重合禁止剤を加えて、これを凝縮器に還流することで、凝縮器内での重合を防止するように構成されている。図1の方法では、バロメトリックコンデンサー3やサーフェイスコンデンサー4で重合が発生しやすかったが、重合禁止剤を有するエジェクターシールタンク液をラインL1を通じポンプ21によりバロメトリックコンデンサー3やサーフェイスコンデンサー4の内部に供給することで、重合の防止が可能である。

【0012】

蒸気エジェクターに代えて、液駆動式エジェクターや液封式ポンプを用いてもよく、図4に示す様な液封式ポンプ13を用いる精製方法の場合にあっては、タンク14に重合禁止剤を供給することにより、液封式ポンプ内の重合を防止することができる。尚、蒸気エジェクターは段数の調整（通常1～5段）により、ほぼ全範囲の真空度で使用できるが、液駆動式エジェクター及び液封式ポンプの場合は、50～760mmHgの真空度が対象となる。

【0013】

また蒸気エジェクターの凝縮器には、バロメトリックコンデンサーとサーフェイスコンデンサーがあり、バロメトリックコンデンサーの場合には、内部構成部材重合防止のために冷却液中に重合禁止剤を投入すればよい。一方、サーフェイスコンデンサーには、管内凝縮と管外凝縮があるが、そのままガスを凝縮すると重合するため、重合禁止剤を含んだ液をスプレーで投入し、構成部材表面を均一に濡らすことにより重合を防止することが望ましい。この場合、均一に濡らすという観点から、横型より縦型の方が好ましく、更に管外凝縮より管内凝縮の方が好ましい。

【0014】

尚、3段以上の複数の凝縮器が配設されている場合には、易重合性化合物蒸気を多く含んでいる第1段や、第1段及び第2段のエジェクターの凝縮器に重合禁止剤を含んだ液を投入することが好ましく、その凝縮器は、サーフェイスコンデンサーよりもバロメトリックコンデンサーにするのが更に好ましい。

【0015】

また、重合禁止剤としては、ハイドロキノン、メトキノン、酢酸マンガン、ニトロソフェノール、クペロン、4-ヒドロキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジノオキシル等が用いられる。

【0016】

以下、本発明を実施例によって更に詳細に説明するが、下記実施例は本発明を限定する性質のものではなく、前・後記の主旨に基づいて設計変更することはいずれも本発明の技術的範囲に含まれるものである。

【0017】

【実施例】

精留塔とリボイラーと凝縮器と3段の蒸気エジェクターからなる図1に示す様な精製装置を用いて、アクリル酸を含有した液を精留塔に投入し、塔頂圧力25 mmHgで運転を行いアクリル酸を塔頂から溜出して、連続的に精製をおこなった。その結果、8日目に塔頂圧力25 mmHgを一定に維持できなくなり、圧力が上昇し始めた。

【0018】

次に、図3のようにバロメトリックコンデンサーやサーフェイスコンデンサーへ重合禁止剤（ハイドロキノン）100 ppmを含んだ液を投入したこと以外は、上記の方法と同様にして、連続的に精製を行った。その結果、1ヶ月間問題なく運転できた。停止して点検してみると、第1段バロメトリックコンデンサー、第2段サーフェイスコンデンサーに重合物の付着が見られた。

【0019】

【発明の効果】

本発明は以上の様に構成されているので、（メタ）アクリル酸や（メタ）アク

リル酸エステル等の易重合性化合物を蒸留するにあたり、重合を防止する方法が提供できることとなった。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

易重合性化合物の従来の蒸留方法を示す概略説明図である。

【図 2】

易重合性化合物の従来の他の蒸留方法を示す概略説明図である。

【図 3】

本発明に係る易重合性化合物の蒸留方法を示す概略説明図である。

【図 4】

本発明に係る易重合性化合物の他の蒸留方法を示す概略説明図である。

【符号の説明】

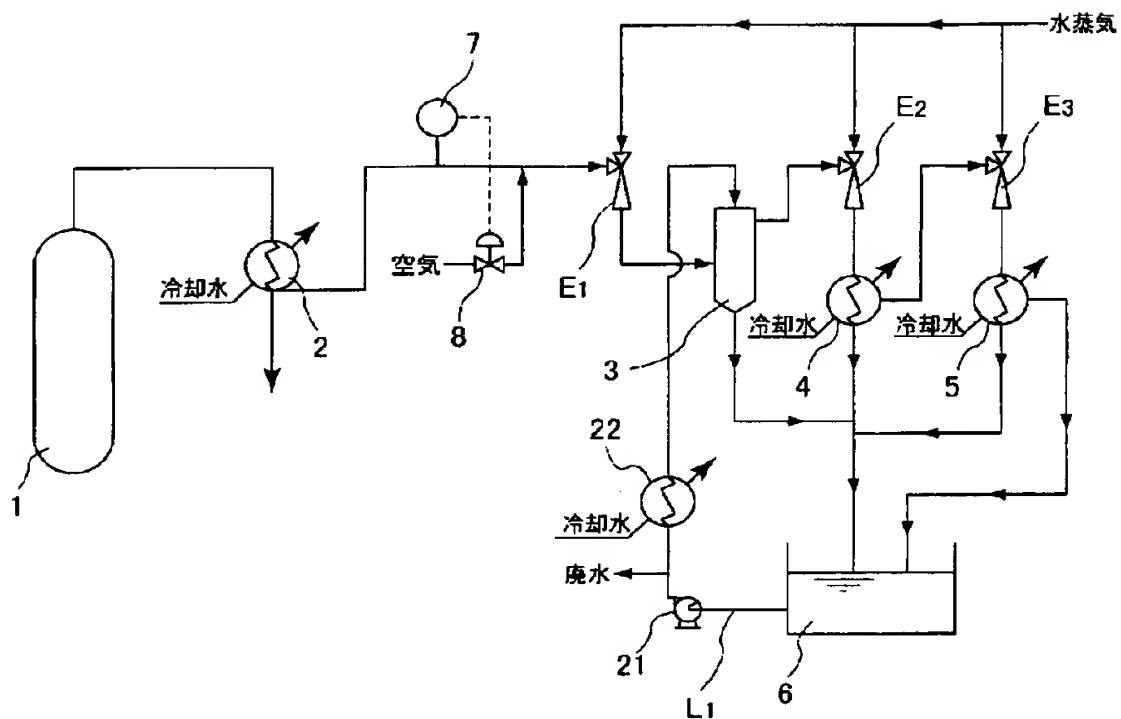
- 1 精留塔
- 2 凝縮器
- 3 バロメトリックコンデンサー
- 4 サーフェイスコンデンサー
- 5 サーフェイスコンデンサー
- 6 エジェクターシールタンク
- 7 圧力計
- 8 空気調節弁
- 1 1 精留塔
- 1 2 凝縮器
- 1 3 液封式真空ポンプ
- 1 4 タンク
- 1 5 ポンプ
- 1 6 圧力計
- 1 7 冷却器
- 2 1 ポンプ
- 2 2 冷却器

- E1 第 1 段エジェクター
- E2 第 2 段エジェクター
- E3 第 3 段エジェクター

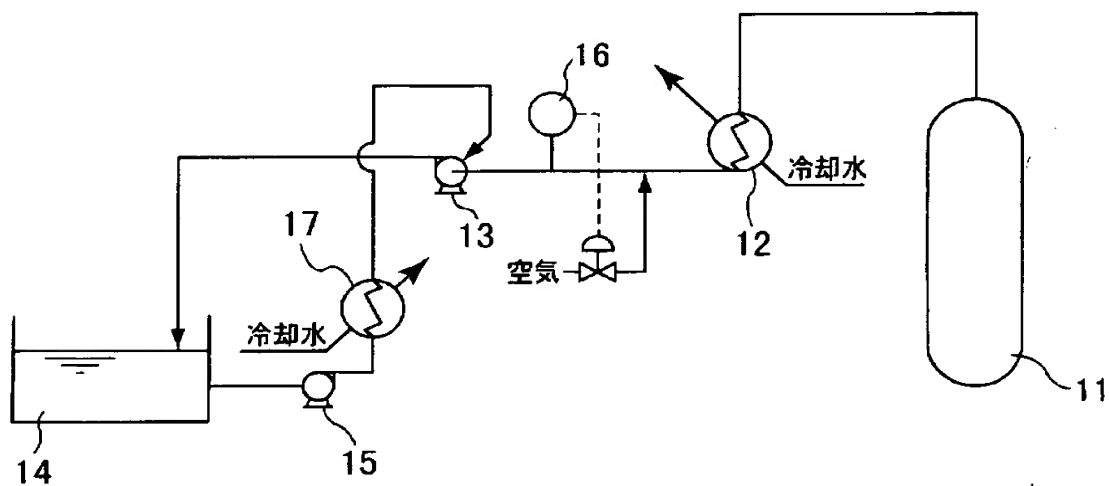
【書類名】

図面

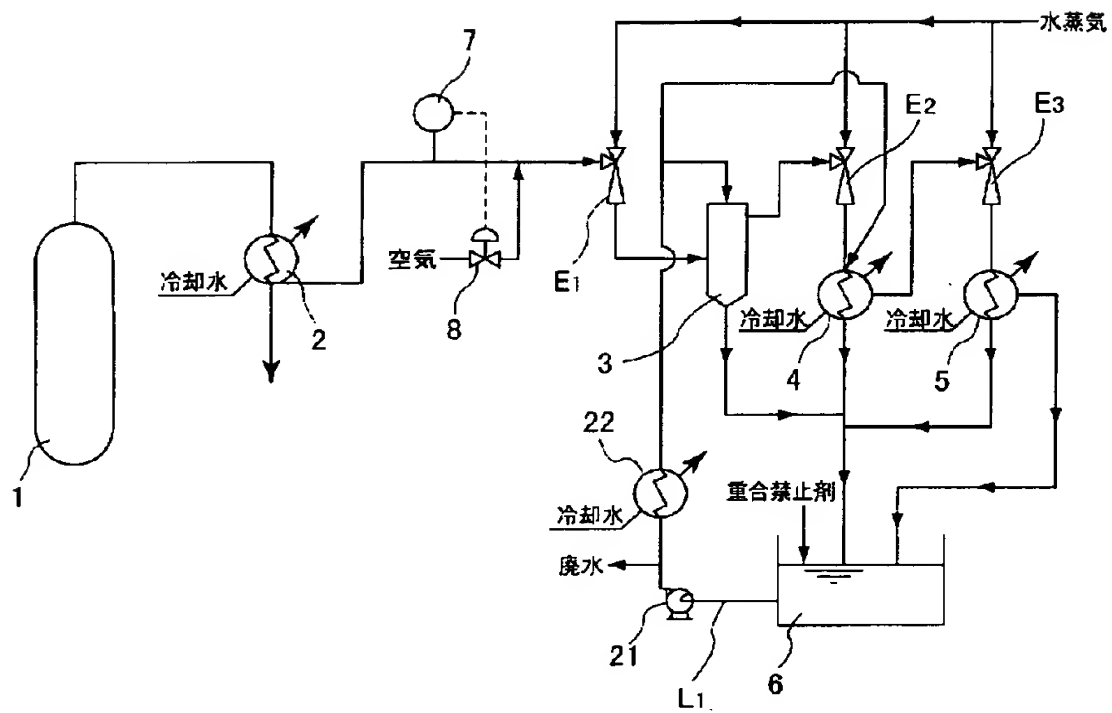
【図 1】



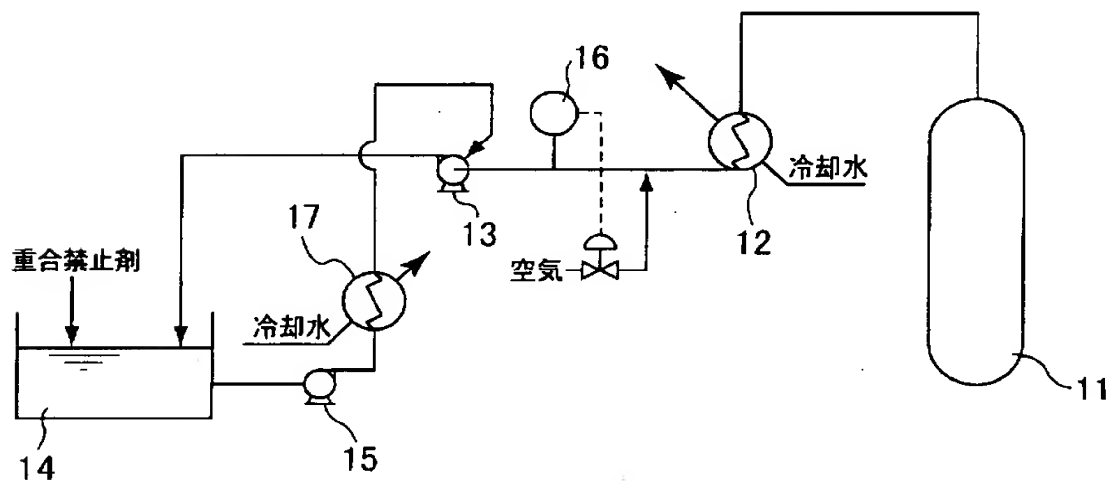
【図 2】



【図 3】



【図 4】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 (メタ) アクリル酸や (メタ) アクリル酸エステル等の易重合性化合物を蒸留するにあたり、蒸留装置内部で発生しやすい重合を防止できる方法を提供する。

【解決手段】 真空装置を用い易重合性化合物を減圧下で精製する方法において、上記真空装置の内部に導入される気体に対し、重合禁止剤を含んだ液体を供給することにより真空装置内での重合を防止する。

蒸気エジェクターと凝縮器からなる真空装置を用いる場合には、該凝縮器内に重合禁止剤を含んだ液体を供給すればよく、真空発生装置として液駆動式エジェクター及び／又は液封式真空ポンプを用いる場合には、該真空発生装置内に重合禁止剤を含んだ液体を供給すればよい。前記易重合性化合物としては、(メタ) アクリル酸や (メタ) アクリル酸エステル等が挙げられる。

【選択図】 図 3

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000004628]

1. 変更年月日	1991年 6月11日
[変更理由]	名称変更
住 所	大阪府大阪市中央区高麗橋4丁目1番1号
氏 名	株式会社日本触媒